

PCT/JP 00/03275

22.05.00

REC'D 07 JUL 2000

WIPO PCT

日本特許庁  
PATENT OFFICE  
JAPANESE GOVERNMENT

4

JP00/3275

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて  
いる事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed  
with this Office.

出願年月日  
Date of Application:

1999年 5月28日

出願番号  
Application Number:

平成11年特許願第149895号

出願人  
Applicant(s):

松下電器産業株式会社

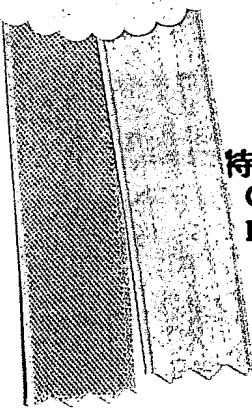
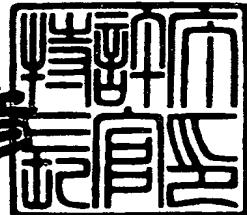
PRIORITY  
DOCUMENT

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2000年 6月23日

特許庁長官  
Commissioner,  
Patent Office

近藤 隆彦



出証番号 出証特2000-3047093

【書類名】 特許願  
【整理番号】 2033710041  
【提出日】 平成11年 5月28日  
【あて先】 特許庁長官殿  
【国際特許分類】 H01M 8/00  
【発明者】  
【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器産業株式会社内  
【氏名】 酒井 修  
【発明者】  
【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器産業株式会社内  
【氏名】 行天 久朗  
【発明者】  
【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器産業株式会社内  
【氏名】 羽藤 一仁  
【発明者】  
【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器産業株式会社内  
【氏名】 安本 栄一  
【発明者】  
【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器産業株式会社内  
【氏名】 西田 和史  
【発明者】  
【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器産業株式会社内  
【氏名】 内田 誠

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 小原 英夫

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 菅原 靖

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 森田 純司

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 松本 敏宏

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 神原 輝壽

【特許出願人】

【識別番号】 000005821

【氏名又は名称】 松下電器産業株式会社

【代理人】

【識別番号】 100097445

【弁理士】

【氏名又は名称】 岩橋 文雄

【選任した代理人】

【識別番号】 100103355

【弁理士】

【氏名又は名称】 坂口 智康

【選任した代理人】

【識別番号】 100109667

【弁理士】

【氏名又は名称】 内藤 浩樹

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 011305

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9809938

【ブルーフの要否】 不要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 高分子電解質型燃料電池スタックとその使用方法

【特許請求の範囲】

【請求項1】 高分子電解質膜を挟んだ一対の電極を、ガス供給路を有する導電性セパレータ板で挟持したものを単位電池とし、保持板を介して前記単位電池を加圧保持し、前記単位電池と前記保持板とをマニホールドケースに収納し、前記保持板は前記単位電池間に空隙を形成したことを特徴とする高分子電解質型燃料電池スタック。

【請求項2】 各単位電池間に波状保持板を介して冷却水を導通することを特徴とする請求項1記載の高分子電解質型燃料電池スタック。

【請求項3】 単位電池の電圧測定治具と前記電圧の表示装置とを具備したことを特徴とする請求項1または2記載の高分子電解質型燃料電池スタック。

【請求項4】 高分子電解質型燃料電池スタックの単位電池の電圧を測定し、前記測定で前記電圧が規定値以下である単位電池を検出した際は、前記単位電池を交換する事を特徴とする請求項1、2または3記載の高分子電解質型燃料電池スタックの使用方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、高分子電解質型燃料電池とその使用方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

高分子電解質型燃料電池は、水素などの燃料ガスと空気などの酸化ガスをガス拡散電極によって電気化学的に反応させるもので、電気と熱とを同時に発生させるものである。このような高分子電解質燃料電池の一般的な構成を図1に示した。

【0003】

図1に於いて、水素イオンを選択的に輸送する高分子電解質膜11の両面には、白金系の金属触媒を担持したカーボン粉末を主成分とする触媒反応層12を密

着して配置する。さらに触媒反応層12の外面には、ガス通気性と導電性を兼ね備えた一対の拡散層13をこれに密着して配置する。この拡散層13と触媒反応層12により電極14を構成する。電極14の外側には、電極14と高分子電解質膜11とで形成した電極電解質接合体（以下、MEA）15を機械的に固定するとともに、隣接するMEA同士を互いに電気的に直列に接続し、さらに電極に反応ガスを供給しつつ反応により発生したガスや余剰のガスを運び去るためのガス流路16を一方の面に形成した導電性セパレータ板17を配置する。

#### 【0004】

ガス流路は、セパレータ板17と別に設けることもできるが、セパレータ板の表面に溝を設けてガス流路とする方式が一般的である。セパレータ板17の他方の面には、電池温度を一定に保つための冷却水を循環させる冷却流路18を設ける。このように冷却水を循環させることにより、反応により発生した熱エネルギーは、温水などの形で利用することができる。このような積層型の電池では、ガス供給孔やガス排出孔、さらには冷却水の供給、排出孔を、積層電池内部に確保したいわゆる内部マニホールド型が一般的である。内部マニホールド型の高分子電解質型燃料電池の一例として、図2にその一部を切り欠いた斜視図を示した。

#### 【0005】

図2において、高分子電解質膜21、触媒反応層22、拡散層23、およびセパレータ板24を積層し、ガス流路25を形成する。そして、電池にガスを供給または排気するマニホールド26、電池を冷却するための水を電池に供給、排出するマニホールド27を形成する。

#### 【0006】

さらに上記のような高分子電解質型燃料電池スタックでは、バイポーラ板等の構成部品の電気的接触抵抗を低減するため、電池全体を恒常に締め付けることが必要である。このためには、多数の単電池を一方向に積み重ね、その両端に2つの端板を配置し、その2つの端板の間を締結用部材を用いて固定することが効果的である。締め付け方式としては単電池を面内でできるだけ均一に締め付けることが望ましく、機械的強度の観点から、端板等の締結用部材にはステンレス鋼などの金属材料が通常用いられる。

## 【0007】

## 【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、上記のような高分子電解質型燃料電池スタックにおいては、複数の単位電池が電気的に直列に積層されているため、製造不良による性能の低い単電池、及び電池の運転に伴って性能の劣化した単電池が、1セルでもスタック中に存在すると、電池スタック全体が低性能のものとなる。さらに、上記のように固体高分子型燃料電池スタックは、両端から恒常的な締め付け圧が加えられているので、性能の低い単位電池のみを交換することは容易ではない。

## 【0008】

## 【課題を解決するための手段】

以上の課題を解決するため本発明の高分子電解質型燃料電池スタックは、高分子電解質膜を挟んだ一対の電極を、ガス供給路を有する導電性セパレータ板で挟持したものを単位電池とし、保持板を介して前記単位電池を加圧保持し、前記単位電池と前記保持板とをマニホールドケースに収納し、前記保持板は前記単位電池間に空隙を形成したことを特徴とする。

## 【0009】

このとき、波状保持板が冷却水路として機能することが有効である。

## 【0010】

また、高分子電解質型燃料電池スタックの使用方法は、高分子電解質型燃料電池スタックの単位電池の電圧を測定し、前記測定で不良である単位電池を検出した際は、性能が不良である前記単位電池を交換する事を特徴とする。

## 【0011】

## 【発明の実施の形態】

本発明は、高分子型燃料電池スタックにおいて、波状保持板で単位電池を個別に固定及び加圧する構造を施すことにより、積層スタック全体の性能に対して悪影響を及ぼす低性能の単位電池を容易に交換することを可能とする。単位電池を積層した後に、両端から加圧するという一般的なスタック構成に比べて、コンパクト性という観点において劣るということが懸念されるが、本発明において導入した波形の金属板を2枚重ねた内側を冷却水流路として利用することにより、コ

ンパクト性は維持される。

#### 【0012】

本発明では、高分子型燃料電池スタックを、単位電池を容易に交換し得るものとするため、従来のように単位電池を積層した後に両端から締結するのではなく、単位電池を挿入する枠が一方向に並んだ構造の本体部に単位電池を挿入、及び排出する形態をとる。各単位電池の固定、及び電気的接触抵抗の低減のために各単位電池間には金属製の保持板を配置する。また、前記保持板は、波形の山どうしを接着させた2枚を1組とし、2枚の内側のスペースが電池温度を一定に保つための冷却水の流路を兼ねることが有効である。冷却水の供給、及び排水は本体部側面に配置したマニホールドによって行う。前記単位電池へのガスの供給及び単位電池からの余剰ガスや生成水の排出に関しては本体部側面に設置したマニホールドによって行う。

#### 【0013】

##### 【実施例】

本発明に好適の実施例を、図面を参照しながら詳細に説明する。

#### 【0014】

##### (実施例1)

本実施例の電池の製造方法を図3をもちいて説明する。粒径が数ミクロン以下のカーボン粒子を、塩化白金酸と塩化ルテニウム酸とを等モル溶解した水溶液に浸漬し、還元処理によりカーボン粉末の表面に白金-ルテニウム触媒を担持させた。このときのカーボンと担持した触媒の重量比は1:1とした。ついで、この触媒を担持したカーボン粉末を高分子電解質のアルコール溶液中に分散させ、スラリー化した。

#### 【0015】

一方、電極ベースとなる厚さ $400\mu m$ のカーボンペーパーを、フッ素樹脂の水性ディスパージョン(ダイキン工業(株)製のネオフロンND-1)に含浸した後、これを乾燥し、400℃で30分加熱処理することで、カーボンペーパーに撥水性を付与した。次に撥水処理を施したカーボンペーパー31の片面にカーボン粉末を含むスラリーを均一に塗布して触媒反応層32を形成し、電極33とした。

## 【0016】

つぎに、2枚の電極33を、電極33よりも一回り外寸の大きい高分子電解質膜34の両面に、触媒反応層32を備えた面がそれぞれ高分子電解質膜34と向き合うようにし、高分子電解質膜34の中央に位置するようにして重ね合わせ、さらにシリコンゴム製のガスケット38を位置合わせした後、100℃で5分間ホットプレスし、電極電解質膜接合体(MEA)35を得た。前記MEA35を長さ20cm、幅10cmに切断した。

## 【0017】

得られたMEA35を一対のセパレータ36で挟んで、単位電池とした。セパレータ36は、厚さ4mmのカーボン製で気密性を有する。またMEAと接する表面には、幅2mmで深さ1mmのガス流路36を切削加工により形成した。

## 【0018】

電池本体を形成する上下の端板はSUS製で、この端板と平行に2枚1組とした保持板37を、単位電池を挿入するべき枠を形成するように等間隔に配置した。保持板37の材質はSUSを母材として、耐食性の向上と接触抵抗の低減の目的で表面に厚さ3μmのAuメッキを施した。

## 【0019】

本実施例の電池では、単位電池を挿入し得る枠を30個形成するように電池本体を構成し、本体の両側面には絶縁体、及びガスケットを介してマニホールドを配した。前記マニホールドを通じて、水素、空気、及び冷却水の供給、排出を行った。本実施例の電池スタックの斜視図を図4に、一部を切り欠いた縦断面図を図5に示した。

## 【0020】

以上の方で作成した電池スタックに関して、模擬改質ガス(水素80体積%、二酸化炭素20体積%、一酸化炭素100ppm)と、空気を燃料ガスとして、水素利用率70%、酸素利用率20%、水素加湿バブラー温度85℃、空気加湿バブラー温度75℃、電池温度75℃、電流密度0.7A/cm<sup>2</sup>で特性試験を行った。試験は、各単位電池の電圧を計測しながら電池運転を行い、運転開始後、閉路電圧が0.4Vに低下した単位電池を抜き取り、新たな単位電池を挿入

して、引き続き電池運転を行った。図6に単位電池を交換した箇所時間と、電池スタックの閉路電圧とを記載した。また図6には、比較例として、上述の交換作業をせず、連続運転したときの電池スタックの特性を合わせて記載した。

#### 【0021】

##### 【発明の効果】

本実施例により、性能が低下した単位電池を交換することにより、電池スタック全体が長期間に渡り高い性能を維持知ることを確認した。

#### 【0022】

以上の評価では、電池スタックの運転中に性能が低下した単位電池を交換する例をしめしたが、本実施例の構成を採用することにより、例えば工場で電池スタックの製造を行う際の、最終製品チェックに適応し、性能不良の単位電池のみを交換することで、製造コストを大きく低減することが出来る。

#### 【0023】

また、保持板として金属で作成した波状のものを用いたが、特にこの形状のものに限定するものではなく、たとえばスポンジ状の金属や、金属製のバネを配置した金属板等、空隙を有する加圧治具であればこの機能を発揮することができる。

##### 【図面の簡単な説明】

###### 【図1】

従来の高分子電解質型燃料電池の構成断面図

###### 【図2】

従来の高分子電解質型燃料電池の構成を示す一部を切欠した斜視図

###### 【図3】

本実施例の高分子電解質型燃料電池の単位電池の構成を示す図

###### 【図4】

本実施例の高分子電解質型燃料電池のマニホールドの構成を示す図

###### 【図5】

本実施例の高分子電解質型燃料電池の単位電池の構成を示す断面図

###### 【図6】

## 本実施例の高分子電解質型燃料電池の特性を示す図

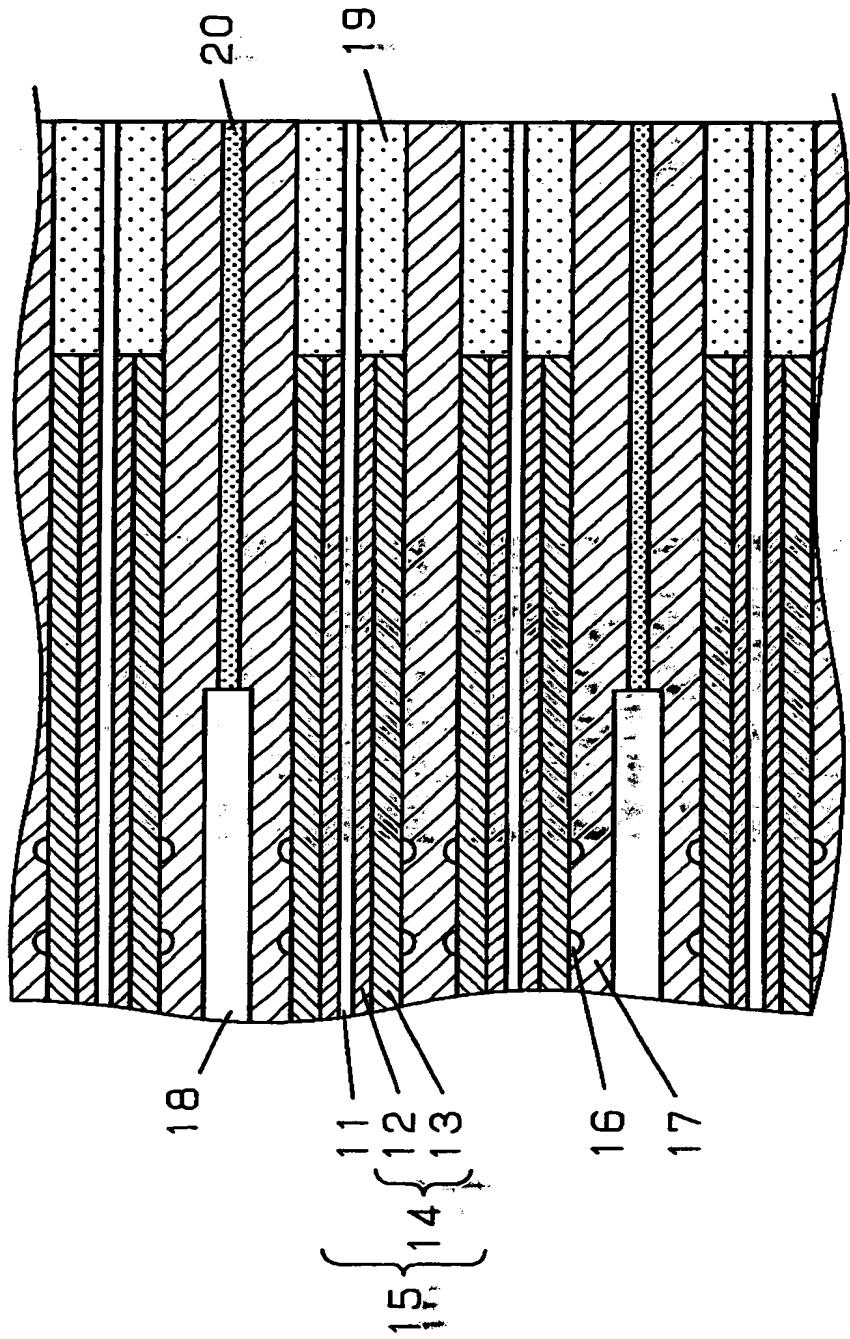
## 【符号の説明】

- 1 1, 2 1, 3 4, 5 1 高分子電解質膜
- 1 2, 2 2, 3 2, 5 2 触媒反応層
- 1 3, 2 3, 3 1, 5 3 拡散層
- 1 4, 3 3, 5 4 電極
- 1 5, 3 5, 5 5 電極電解質接合体
- 1 6, 2 5, 5 6 ガス流路
- 1 7, 2 4, 3 6, 5 7 導電性セパレータ
- 1 8, 5 8 冷却水路
- 1 9, 3 8, 5 9 ガスケット
- 2 0, 4 4 シール剤
- 2 6, 4 1 ガスマニホールド
- 2 7, 4 2 冷却水マニホールド
- 3 7, 6 0 保持板
- 4 3 絶縁体

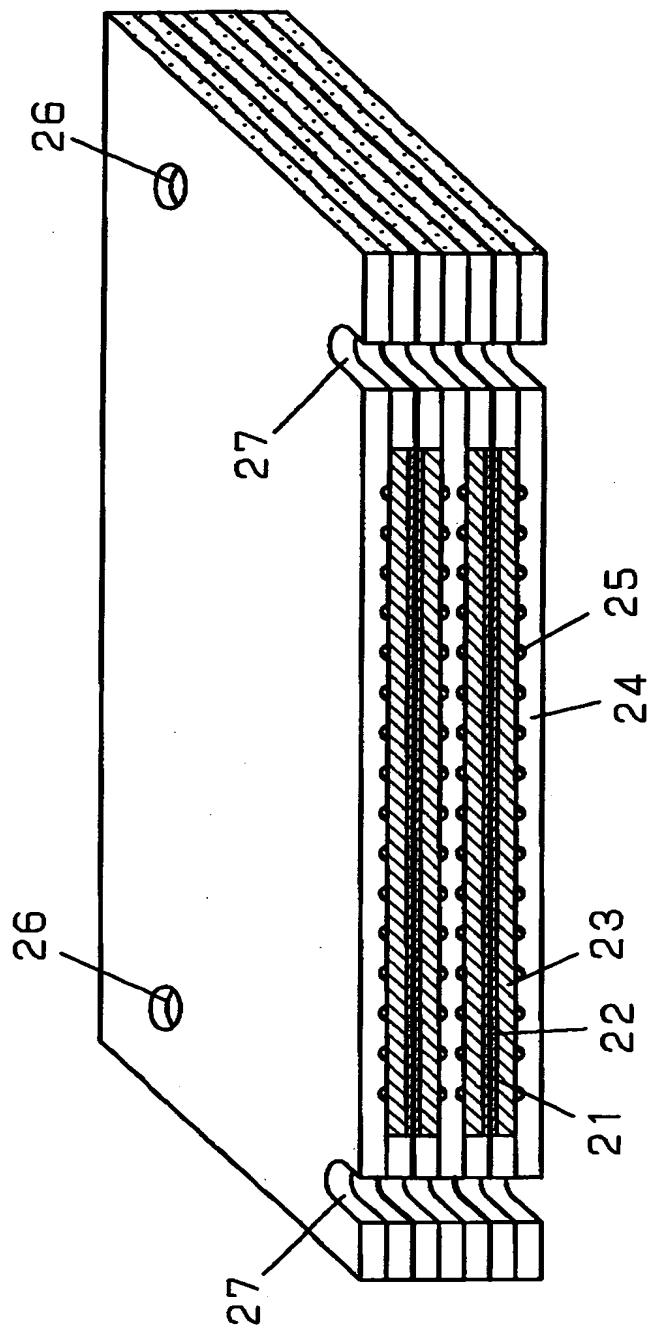
【書類名】

図面

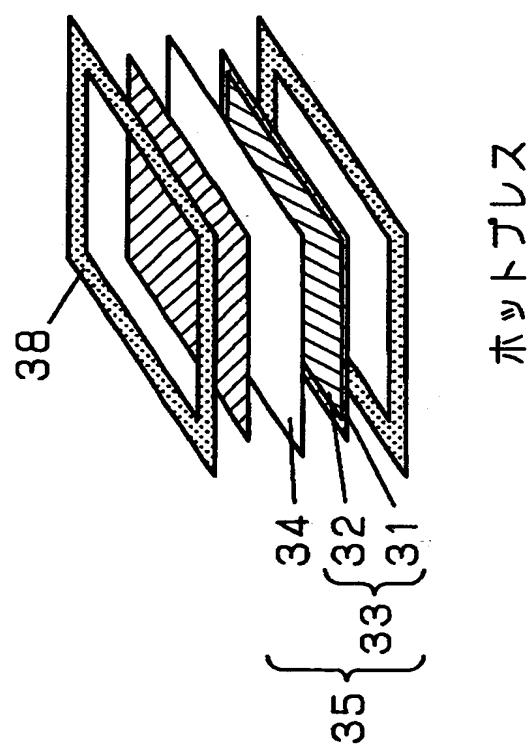
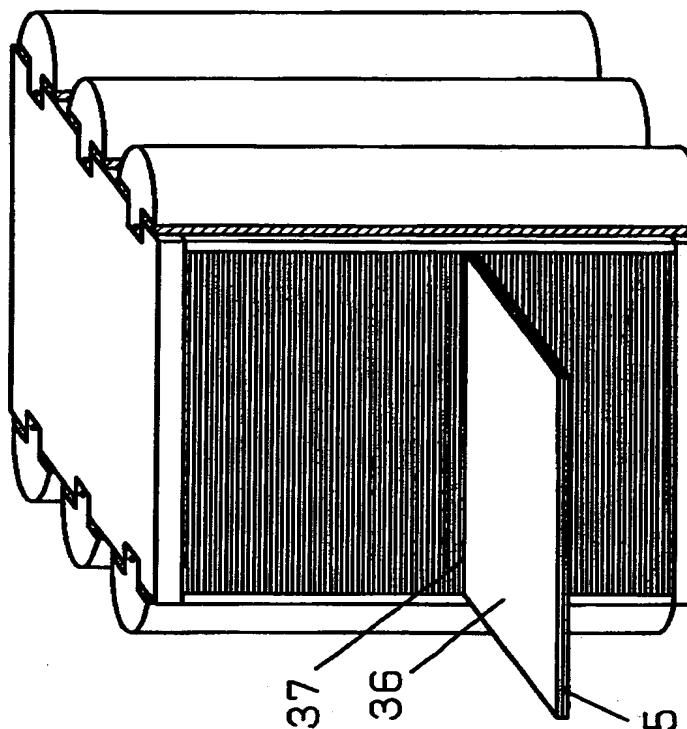
【図 1】



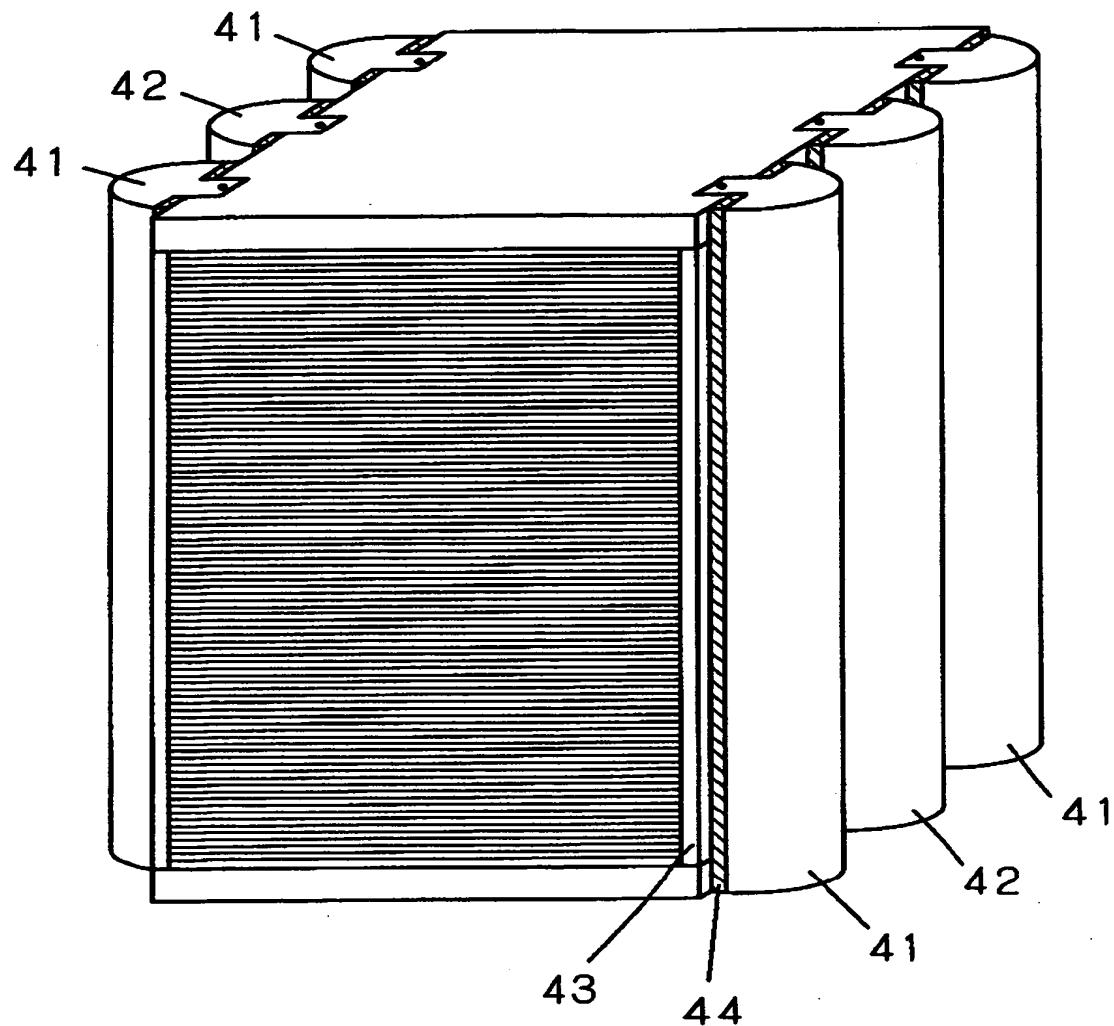
【図2】



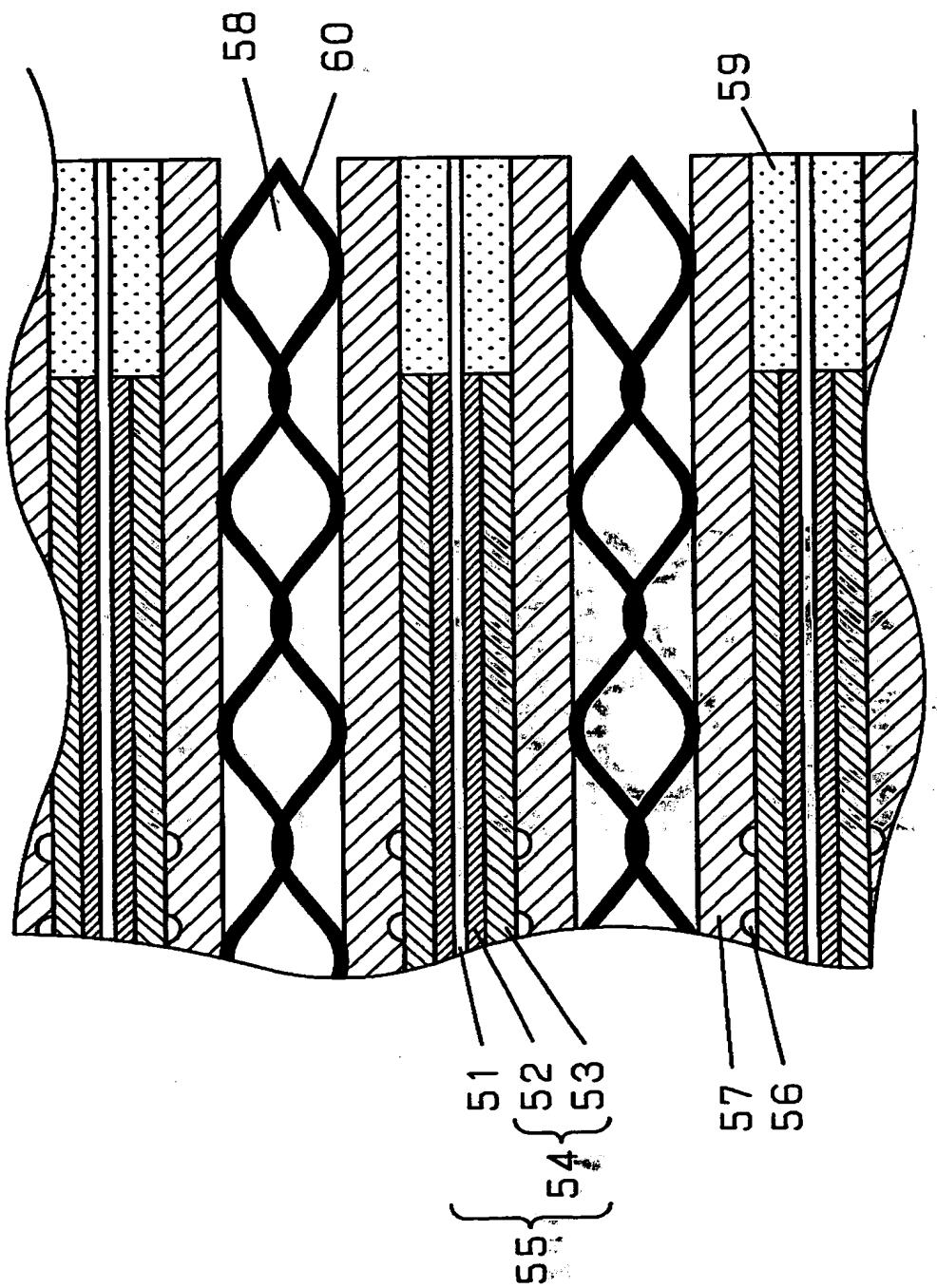
【図3】



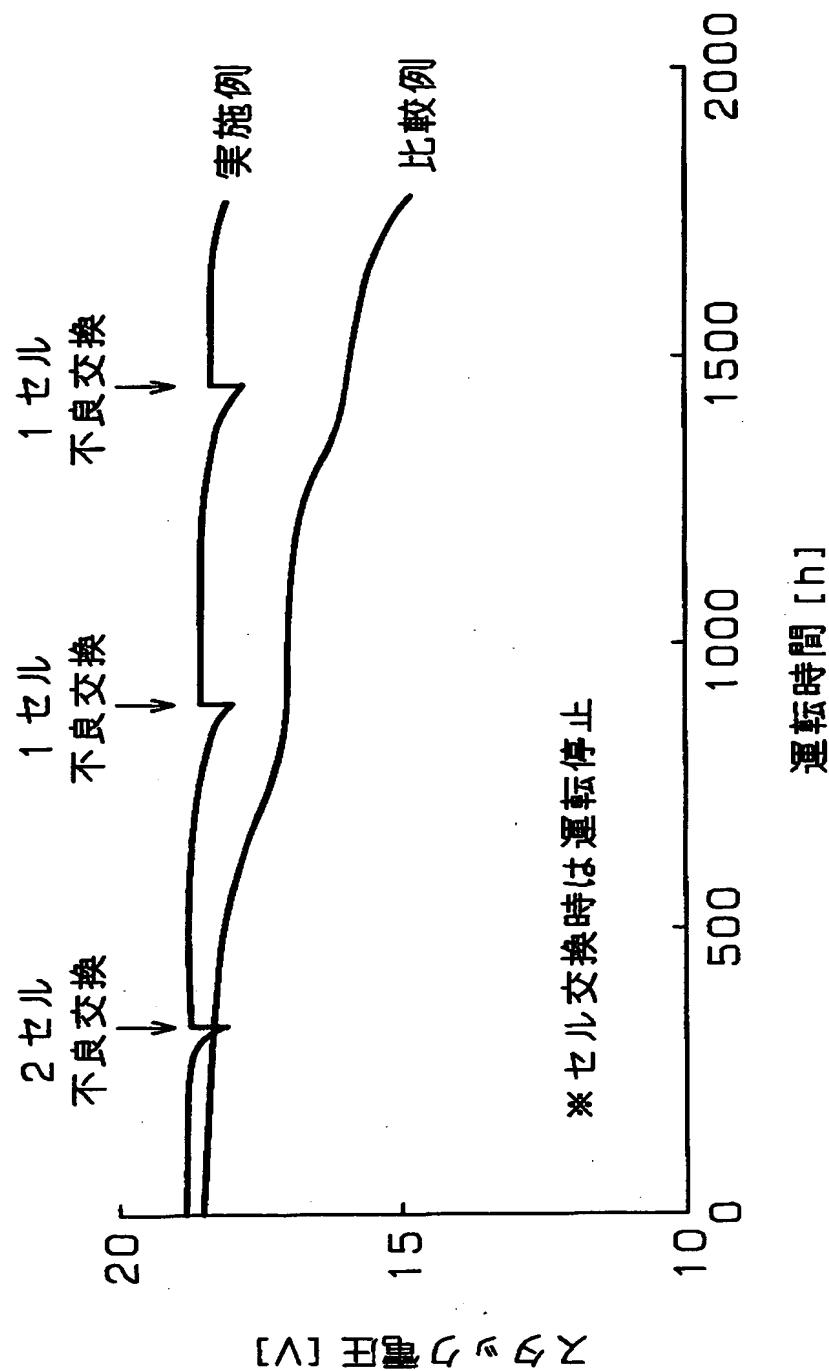
【図4】



【図5】



【図6】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 固体高分子型燃料電池スタックにおいて、単位電池は電気的に直列に積層されており、両端から恒常的な締め付け圧が加えられているため、性能の低いセルや性能の劣化したセルが1セルでも積層スタック中に存在すると、電池スタック全体が低性能のものとなり、かつその性能の低い単位電池を交換するには非常に困難である。

【解決手段】 高分子型燃料電池スタックにおいて、単位電池を積層した後に両端から締結するのではなく、金属製波状セル保持板を配して単位電池を個別に固定及び加圧する構造を形成することにより、任意の単位電池を容易に交換することを可能とする。

【選択図】 図5

出願人履歴情報

識別番号 [000005821]

1. 変更年月日 1990年 8月28日

[変更理由] 新規登録

住 所 大阪府門真市大字門真1006番地

氏 名 松下電器産業株式会社

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**